

AS

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表平11-502052

(43) 公表日 平成11年(1999) 2月16日

| (51) Int.Cl. ⁹ | 識別記号 | F I | | |
|----------------------------|------|---------|------|---|
| H 0 1 M | 8/12 | H 0 1 M | 8/12 | |
| | 4/86 | | 4/86 | T |
| | 4/88 | | 4/88 | T |
| | 8/02 | | 8/02 | B |
| | | | | Y |
| 審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 22 頁) | | | | |

(21) 出願番号 特願平8-527399
 (86) (22) 出願日 平成8年(1996) 3月18日
 (85) 翻訳文提出日 平成9年(1997) 9月10日
 (86) 国際出願番号 P C T / G B 9 6 / 0 0 6 3 9
 (87) 国際公開番号 W O 9 6 / 2 8 8 5 6
 (87) 国際公開日 平成8年(1996) 9月19日
 (31) 優先権主張番号 9 5 0 5 3 0 1 . 3
 (32) 優先日 1995年3月16日
 (33) 優先権主張国 イギリス (G B)
 (31) 優先権主張番号 9 6 0 2 2 8 4 . 3
 (32) 優先日 1996年2月5日
 (33) 優先権主張国 イギリス (G B)

(71) 出願人 プリティッシュ ヌークリア フューエルズ ピーエルシー
 イギリス国, チェシャー ダブリュエイ 3
 6 エイエス, ウォーリントン, リスレイ
 (番地なし)
 (72) 発明者 レウィン, ロバート グリン
 イギリス国, プレストン ピーアール4
 0 エックスジェイ, サルウィック, スプリ
 ングフィールド・ワークス, プリティッシ
 ュ ヌークリア フューエルズ ピーエル
 シー内 (番地なし)
 (74) 代理人 弁理士 伊東 忠彦 (外1名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 特定の電極層を持つ固体酸化物燃料電池

(57) 【要約】

固体酸化物燃料電池 (110) 及び製造方法。電池 (110) は電解質物質の層 (112) とその異なる面の上に第一及び第二の電極 (116, 120) を有する。該電極は混合導体であるセパレータ層 (114, 118) により電解質から分離される。該燃料電池はスタック中で使用されうる。

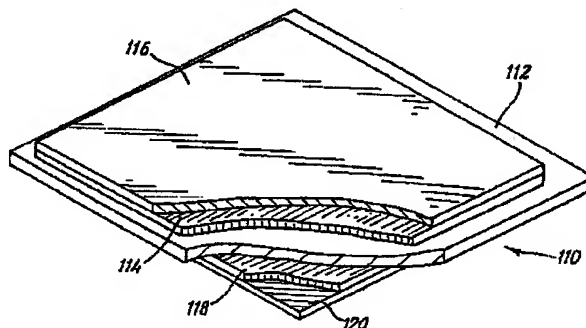


FIG. 3

【特許請求の範囲】

1. 電解質物質の層と、少なくとも一方が該電解質物質と反応する該電解質物質の層の一方の面上の第一の電極物質の層及び該電解質物質の層の他方の面上の第二の電極物質の層と、該反応性電極物質を該電解質層から分離している混合導体からなるセパレータ層とからなる固体酸化物燃料電池。
2. セパレータ層は電極として作用し、その上に搭載された該電極層は電流コレクタとして作用する請求項 1 記載の固体酸化物燃料電池。
3. 該二つの電極層の物質は同じである請求項 2 記載の固体酸化物燃料電池。
4. 少なくとも一の電極はウラニアからなる請求項 2 又は請求項 3 記載の固体酸化物燃料電池。
5. ウラニアはイットリアとの固溶体として与えられる請求項 4 記載の固体酸化物燃料電池。
6. イットリアはウラニアとの混合酸化物の 40 モルパーセントから 60 モルパーセントまでを形成する請求項 5 記載の固体酸化物燃料電池。
7. 電流コレクタはペロブスカイト及び／又はコバルタイト酸化物を含む請求項 2 乃至請求項 6 の何れか記載の固体酸化物燃料電池。
8. 電流コレクタはランタン ストロントウム コバルタイトを

含むかまたはそれからなる請求項 2 乃至請求項 7 の何れか記載の固体酸化物燃料電池。
9. 電極層または各電極層の厚さは 100 ミクロンメートルより小さい請求項 2 乃至請求項 8 の何れか記載の固体酸化物燃料電池。
10. 電解質タイルの生成と該タイルへのウラニアからなる電極層の適用とからなる固体酸化物燃料電池の製造方法。
11. 電極層はウラニアとイットリアとバインド剤との懸濁液から形成される請求項 10 記載の方法。
12. 固溶体であるウラニア及びイットリアは懸濁液を形成するためにジルコニアと混合される請求項 11 記載の方法。
13. 電流収集層は一方若しくは両方の電極層の上に具備される請求項 10 乃

至請求項 1 2 の何れか記載の方法。

1 4. 電極層及び／又は電流収集層は電解質タイル上にスクリーン印刷される請求項 1 3 記載の方法。

1 5. 隣接するセルの電極物質は導電性物質により接続される、前記の請求項 1 から 9 のいずれかーに記載の、又は請求項 1 0 から 1 4 の何れかーの方法により製造された燃料電池のスタック。

1 6. 前記請求項の何れか記載の燃料電池の、又はそれにより生産された電流の使用。

【発明の詳細な説明】

特定の電極層を持つ固体酸化物燃料電池

本発明は燃料電池にかかり、特に固体酸化物燃料電池に関する。

燃料電池は反応体から得られた化学エネルギーを電気エネルギーに変換する電気化学素子である。従来、そのような素子の数多くの異なる系統が開発されてきた。これらはセル内で使用される電解質のタイプ及び通常の動作温度に従い異なっている。全ての素子は陽極若しくは負電極で燃料を消費し、陰極若しくは正電極で酸化剤を消費する。固体酸化物燃料電池は一般に知られ、緊密な電氣的接触の中に陽極と陰極を具備する産業標準の電解質タイルからなる。

ほとんどの知られたSOFCsにおいて、電解質は陽極と陰極の間に含有され、スタック中の隣接セルの陽極と陰極は相互接続により、またはセル間の電気伝導を可能とするとともに反応体ガスが陽極と陰極に隣接する領域に分離して届けられることを可能にするバイポーラプレートにより接続される。反応体ガスは一般に酸化剤である空気により通常供給される酸素と、燃料である水素又は、例えばメタンのような炭化水素である水素含有化合物からなる。相互接続又はバイポーラプレート又はその一部は、電気化学過程を促進する電極表面への及び電極表面からの電子の輸送を可能とするために導電性であることと同様に、反応体ガスの分離を維持するためにガスを通さない必要がある。

しかし、これらの通常のSOFCsはそれらの多様な形態において、非経済的、高コスト若しくは非能率的であるという問題に直面する。これらの問題を解決し、そしてSOFCsの特性を改善する

ため、試みはなされてきた。効率は向上可能とされるが、これは約1000°Cまでの動作温度の上昇を含んでいた。かかる高温はセルと関連支持構造の構成に使用可能な物質の種類を限定する。高価な新種の物質が動作状態に耐えるために必要である。更に電池の動作寿命は低下される。

他の代替品は電解質の厚さを減少しようとするものであり、このことはセル抵抗を低下すると考えられているからである。しかし、薄い電解質は支持媒体を通して追加の強化を必要とするか又はセルは実用可能となるには脆すぎてしまう。

これは再びコストを増大させ、新種の物質が動作条件に耐えるために使用されることを必要とする。

本発明によれば、電解質物質の層と、少なくとも一方が該電解質物質と反応する該電解質物質の層の一方の面上の第一の電極物質の層及び該電解質物質の層の他方の面上の第二の電極物質の層と、該反応性電極物質を該電解質層から分離している混合導体からなるセパレータ層とからなる固体酸化物燃料電池が提供される。

本発明の記載における混合導体は、電子と酸素イオンの両方を少なくとも部分的に伝導する物質である。混合導体層は通常、電極物質のそれぞれと電解質物質の間に備えられる。そのような場合、その二層の混合導体物質は異なりうるが、好ましくは同一である。電解質から間隔を置かれた通常セルからの電極物質は、混合導体物質が備える電極機能（電極）を主に電流収集機能（電流コレクター）に提供することがわかった。

望ましくは、該セパレータ／電極物質は、隣接する電極／電流収集物質の表面に届けられるガスによる酸化若しくは還元雰囲気中

で安定なセラミック酸化物物質である。電極／電流収集物質の両方に隣接して使用される同じ物質であるために、望ましくは、酸化雰囲気及び還元雰囲気の両方で安定である。

本発明にかかる S O F C 内での使用に対して好ましいセパレータ／電極物質はウラニア、 UO_2 である。好ましくは、前述の安定性を与えるためにウラニアは一若しくはそれ以上の別の酸化物でドーピングされる。ウラニアは例えば安定化剤としてイットリアでドーピングされえ、好ましくは 40 モルパーセントから 60 モルパーセントのウラニアとの混合酸化物を形成する。

電極物質は混合酸化物の導電性の内層であることが好ましく、それはウラニアとジルコニアからなることが最も好ましい。最も好ましくは、ウラニアはイットリアとの固溶体として提供される。

導電性内層は以下の、イットリア安定化ジルコニア；タラ肝臓油；ポリビニルブチラル；ポリエチレングリコール；ジブチルフタレート；エタノール；テルピ

ネオールの一若しくはそれ以上から更になる懸濁液から生成される。

使用されるウラニアは天然又は天然のウラニアより少ない U_2O_5 の含有量を持つ消耗されたウラニアからなる。

セパレータ／電極物質の層（または、一以上である場合はそれぞれの層）の厚さは、セパレータ／電極物質によって分離される電解質物質と電極／電流収集物質との間のイオン伝導が維持されるように、好ましくは 100 ミクロンメートル以下である。

電極物質は、イットリアのような安定化剤で付加的にドーブされ

た ZrO_2 によるイオン性の導電性マトリックスからなる。

電解質は電解質タイルとして提供される。それは、好ましくは 3-12 % のイットリアを含み、最も好ましくは約 8 % である、イットリア安定化ジルコニアから生産される。

代わりとして電解質は水性懸濁液を用いて生産されたタイルである。この水性懸濁液は以下のジルコニア、バインダー及び分散剤のうちから一若しくはそれ以上を含む。好ましくは一若しくはそれ以上のポリビニルアルコール (PVA)、ポリエチレングリコール及び分散剤が懸濁液中に付与される。適切に重量比で 35 % と 60 % の間のジルコニア、及び 35 % と 60 % の間のバインダー、5 % までの PVA がある。懸濁液はまた、2 % から 8 % の間のポリエチレングリコールと 1 % から 5 % の間の分散剤を含む。好ましくは、懸濁液は 100 g のジルコニア；100 g の 5 % PVA 水溶液；10 g のポリエチレングリコールと 5 g の分散剤を含む。他の適当な電解質が使用されうる。

水素導入に隣接する陽極物質／（電流収集物質）電流コレクタは混合 NiO/ZrO_2 系であって、最も好ましくはサーメットの形のものからなる。

酸素導入に隣接する陰極物質／電流コレクタは、例えばランタン、ストロンチウム及び鉄及び／又は酸化コバルトと同様の酸化マンガンからなる混合酸化物である、コバルタイト酸化物系から一般にはなる。

ランタン ストロンチウム コバルタイト (LSC) は、陰極電流コレクタのための特に好ましい電流収集／電極物質である。しか

し、電流コレクタはいずれかの適当な導電性の酸化物若しくはペロブスカイトである。

陰極は好ましくは、増大された電子及びイオンの伝導性を付与するドーブされたランタン ストロンチウム コバルタイト電流コレクタを具備する。LSCは従来はジルコニア電解質とLSCが共存しえないことから実現性はなかった。しかし、本発明に従うSOFC中のセパレータ／電極物質の使用は、適当に有効な電位化学変換及びイオン伝導の維持を有効に許容する一方、電解質物質とLSC物質の反応の回避を可能とする。驚くべきことに、ウラニアベースのセパレータ／電極物質により電解質物質から分離される陰極であるコバルタイトベースの電極／電流収集物質と一緒に使用されるZrO₂ベースの電解質物質の利用で、従来技術の中で広く調べられたLa、Sr及びMn酸化物からなる低反応性のランタンベースの電極物質を有する同様のZrO₂ベースの電解質物質を使用することにより、電流密度出力はより大きくなりうる。

LSCは好ましくは印刷され、最も好ましくは電解質タイル上にスクリーン印刷される。

セパレータ／電極物質層は通常、本発明に従うSOFCの動作において（以下の記載に従う）電気化学過程中で形成される有効なイオン伝導を達成するために伝導性部位の二次元配列を備える。

セパレータ／電極物質として使用されるウラニアはまた、電解質と、例えば以下に述べる実施例中で与えられる特異な物質である電極物質との間の熱膨張特性における良い適合を提供する。

本発明の第二の特徴によると：

電解質タイルの製造する段階と；

ウラニアからなる電極層をタイルに適用する段階とからなる燃料電池の製造方法が提供される。

本発明の第三の特徴によると：

電解質タイルの製造する段階と；

電極層をタイルに適用する段階と；

電流収集物質を電極に適用する段階とからなる燃料電池の製造方法が提供される。

好ましくは電極層はウラニアからなる。

第二及び第三の特徴に対する他の選択性は以下のものを含む。；

好ましくは、電極層及び電流収集物質は電解質の両側に適用される。

電解質タイルは好ましくはジルコニアの懸濁液から製造される。最も好ましくは懸濁液は水ベースのものである。懸濁液は好ましくはバインド剤及び分散剤と一体となる。バインド剤は好ましくはポリビニルアルコール及びポリエチレングリコールであるが、他の適当なバインド剤も使用されうる。分散剤は石鹼液が可能であるが、他の適当な分散剤も使用可能である。好ましくはジルコニアは5% PVAと混合され、その後通常は残りの物質がそこへ添加される。この混合物は好ましくは数日間ボール磨砕される。この混合物はそれから通常はスラブキャストされ大気温度で自然乾燥される。

電極層は好ましくはイットリア ウラニア ジルコニア懸濁液から形成される。電極層は好ましくはバインド剤及び溶剤を含み、こ

れらは好ましくはタラ肝臓油、ポリビニル；ポリエチレングリコール、ジブチルフタレート及びエタノールである。しかし、他の適当なバインド剤と溶剤の組み合わせも使用されうる。混合物は好ましくは21日間ボール磨砕され、そして望ましくはエタノールは少なくとも24時間の間に留去するようにされる。その段階で、好ましくはテルピネオールが添加されて混合物は攪拌される。UO₂から分離しない安定なインクを提供することが重要である。

電流収集層は陽極用の標準ニッケル／ジルコニアサーメット及び陰極用のランタン ストロンチウム コバルタイト若しくはランタン ストロンチウム マンガナイト、又は他の適当な導電性の粉でありうる。電流収集層の形態は好ましくは標準的なスクリーン印刷インキである。これは陰極の場合好ましくは、ドーブされたLSC、メタノール、ポリビニルピロリドンの懸濁液により生成される。この混合物は好ましくは13日間ボール磨砕され、その後メタノールが24時間の間に留去するようにされ、それからそこにテルピネオールが添加されて混合物

は攪拌される。陽極及び陰極電流コレクタは好ましくは電解質タイル上にスクリーン印刷される。

本発明の第四の特徴によれば、本発明の第一の特徴に従う燃料電池、又は本発明の第二若しくは第三の特徴に従って製造されたものの使用法が提供される。

本発明の第五の特徴によれば、前記の特徴に従う燃料電池の手段により電流の生成方法が提供される。

本発明の第六の特徴によれば、水性懸濁液から電解質タイルを製造する方法が提供される。

本発明の実施例は添付の図面に関する例として次に記載される。

そして、図 1 は S O F C の側面図である。

図 2 は図 1 に示されたものと同種の S O F C s の一列又はスタックの側面図である。

図 3 は本発明の第一実施例の部分分解された透視図である。

図 4 A は従来の電池の特性を示すグラフである。

図 4 B は本発明の実施例の特性を示すグラフである。

図 1 は基板電解質層 3 の上に他の層を堆積することにより形成された S O F C 1 を示す。電解質層 3 のための適当な基板物質は公知の組成の焼結された Y_2O_3 安定化ジルコニアのプレートリットである。電解質層 3 はそのそれぞれの面に堆積されたセパレータ層 5, 7 を有する。セパレータ層 5, 7 は酸化雰囲気での保護を提供するための安定化剤である 40 から 60 モルパーセントのイットリアを伴う混合酸化物中の消耗されたウラニアである。

セパレータ層 5 は例えば NiO_2/ZrO_2 から得られる陰極層 9 を支持する。セパレータ層 7 は、例えば La, Sr, Fe 及び／又は Co と同様の Mn の酸化物を一般に含む公知のコバルタイト組成から形成された陰極層 11 を支持する。

図 1 に示された S O F C 1 は公知の方法により組み立てられる。

例えば空気中の酸素は公知の方法により陰極層 11 に隣接する領域に届けられ、その層を通過してセパレータ層 7 まで拡散する。酸素原子はセパレ

一タ層 7 中にある電子により還元される。この過程で形成された負の酸素イオンはセパレータ層 7 を通り、その後電解質層 3 を通ってセパレータ層 5 まで輸送される。水素（例えば、炭化水素からの再生により得られる）は公知の方法で陽極 9 に近接する領域まで届けられる。水素は陽極層 9 にある NiO の導電性 Ni までの還元を行う。水素はセパレータ層 5 と陽極層 9 の間の界面でイオン化される。層 5 表面で放出されたプロトンはセパレータ層 7 からの酸素イオンと再結合する。電気回路はそれぞれ陽極層 9 と陰極層 11 に接続される導体 8, 10 により完成され、セパレータ層 7 で還元過程を連続するための電子供給の提供が完了したとき、セパレータ層 5 で水素のイオン化により形成された電子は陽極層 9 と陰極層 11 を経て回路に沿って流れる。正味の効果は外部の回路を通る電流の流れを提供することである。

図 2 中に示されるように、SOFCs のスタックは、SOFC 1 と同一のさらなる SOFCs 1a, 1b と電氣的に直列に接続された図 1（図 2 では輪郭のみが示される）の SOFC 1 からなる。SOFCs 1 と 1a との間の内部接続は内部接続物質 13 により形成され、SOFCs 1 と 1b との間の内部接続は内部接続物質 15 により形成される。物質 13 と物質 15 は同一である。物質 13 と 15 は公知のバイポーラプレート物質または、代わりとして、例えば Ni 合金の泡からなり、バリア層により分離された反応体ガス O_2 及び H_2 がそれを通して簡単に届けられうる導電性の泡又は多孔性の物質の層からなる。出力電流は、それぞれ SOFCs 1a の陽極層と SOFCs 1b の陰極層に接続される導体 17, 19 を経て外部の回路中で取り出される。

図 1 に示された SOFCs の直列のスタックによって得られる出

力電圧は、各 SOFC により提供される電圧に SOFCs の数を乗じられたものに等しい。従って、スタックの出力はスタック中の SOFCs の存在数増加によって増大されうる。

図 3 中に示されるセル 110 は混合酸化物電極 114 を支持する電解質タイル 112 からなる。電極 114 はタイル 112 と電氣的に接続している。電極 114 上に搭載されるのは陽極電流収集層 116 である。この層 116 はまた電極 1

14と電氣的に接続している。

タイルの反対側には別の混合酸化物電極 118 がそれの上に搭載された陰極電流収集層 120 とともに具備される。

電解質タイルは初めに、スラブキャストにより望みの形と厚さとなるように製造される。タイル 112 は、100 g のジルコニアと：100 g の 5 % のポリビニルアルコール（185, 000 までの MW）水溶液と：10 g のポリエチレングリコール（1, 500 までの MW）と：5 g の分散剤とからなる水性の懸濁液からキャストされる。実験室スタイルの石鹼液は適当な分散剤を提供するか、他のものも使用可能であった。

懸濁液はジルコニアとポリビニルアルコールをその後添加される他の物質と一緒に混合することにより作られる。混合物はその後数日間ボール磨砕される。

懸濁液はキャスト中に置かれ、大気温度で自然に乾燥するようにされ、その後 1550° C より高くない温度で焼結される。そうして製造されたタイル 112 はその後次の製造段階で使用される。

PVA 以外の別のバインダーも使用されうる。同様に別の希土酸化物物質でドーブされたジルコニアを含む別の電解質ベース物質が使用されうる。有機溶剤は従来のタイル製造において使用される。

混合酸化物電極 114 は安定なインク懸濁液から製造される。懸濁液は 17.19 g の 50 mol % イットリア UO_2 固溶体と、13.65 g のジルコニアと、0.81 g のタラ肝臓油と、4.5 g のポリビニルブチラルと、1.33 g のポリエチレングリコールと、1.2 g のジブチルフタレートと、36 g のエタノールとをボールミル中で 21 日間混合することにより製造された。エタノールはその後 24 時間の間に懸濁液から留去するようにされる。20 g のテルピネオールがその後添加されて中で攪拌される。

得られた懸濁液は前もって作られたタイル 112 上に望みの厚さでスクリーン印刷される。混合酸化物電極層 114 は大気温度での乾燥がなされ、その工程はタイル 112 の別の面に対して繰り返される。混合酸化物層 114 はその後 1550° C より高くない温度で焼結される。

電極層 114, 118 は酸化及び還元条件下でのその安定性によって重大な利点を提供する。その熱膨張係数はまた、使用が望ましい 8 mol % イットリアのジルコニアタイルのそれと適合する。電極層 114, 118 はまた、望みの部位に電子と酸素イオンを伝導するその能力によって有用である。

本実施例中で使用される電流コレクタ層 120 はランタン ストロンチウム コバルタイトである。この物質はペロブスカイトであり、タイルの面上で第一の電流コレクタとして作用する多少の酸素イオン伝導性を持つ電気伝導性の酸化物である。

ランタン ストロンチウム マンガナイトを含む別のペロブスカイトが使用される。ランタン ストロンチウム コバルタイトは優れた電子及びイオン伝導性の物質である。それは、内層の良好な導入のために本系の中で使用されるのみである。ランタン ストロンチウム コバルタイトはそれがジルコニア層と共存しえないために従来は使用されえなかった。

ランタン ストロンチウム コバルタイトは 30 g のドーブされたランタン ストロンチウムを 30 g のメタノール及び 1.59 g のポリビニルピロリドン中に分散することによるインクとして製造される。その物質はボールミルを使用して 13 日間混合される。混合に続き、メタノールは 24 時間の間に留去するようにされ、その後 10 g のテルピネオールが添加されて中で攪拌される。陰極電流コレクタ層 120 は混合酸化物層の上に望みの厚さでスクリーン印刷により適用され、1550°C より高くない温度で焼結される。

陽極電流コレクタ層 116 は、前に陽極として燃料電池中で使用された通常のニッケル/ジルコニアサーメットから形成される。

この層 116 が電極としてよりむしろ第一の電流導体として作用することにより、金属若しくは合金の粉の系でのその置き換えは可能である。

図 4 A は、電流密度に対する電圧の観点から、典型的な従来のタイル系の性能を示す。認識可能なように性能は 1000°C 以下でかなり低下している。

しかし、図 4 B は本発明にかかる電池は全域にわたって均一に改

善された性能を持つことをはっきりと示す。発明の物質の 725°C での性能は従来技術の 905°C での性能とまさに匹敵する。

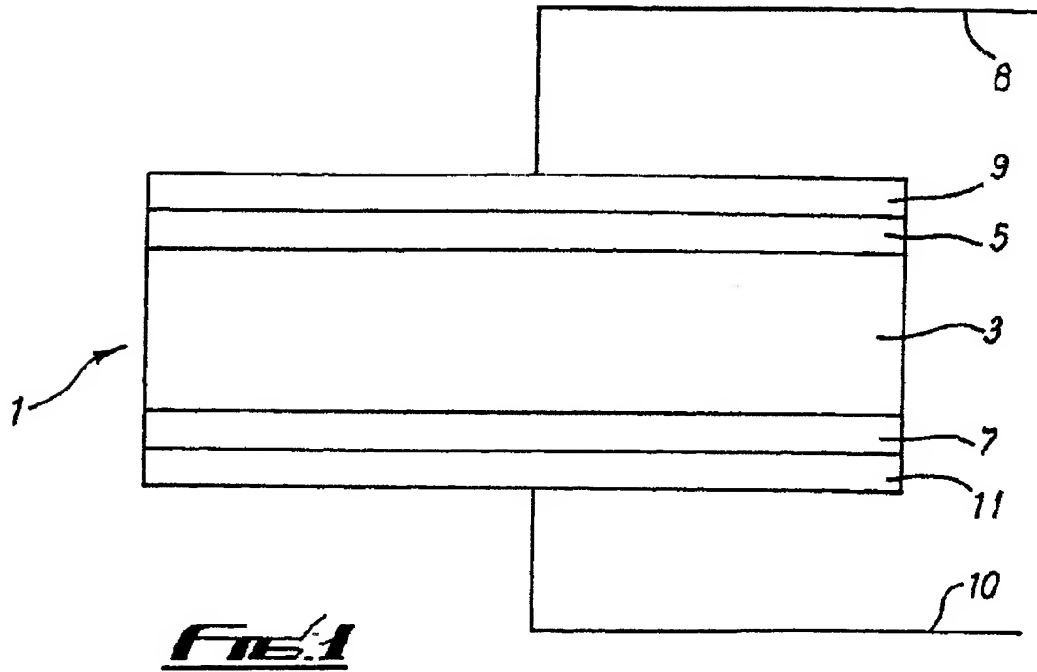
新規な電池構造の改善された特性はまた、活性化エネルギーにおいて反映される。従来電池は新規な電池の $53\text{ kJ}/\text{mol}$ に対して $80\text{ kJ}/\text{mol}$ の活性化エネルギーを示す。この改善は、より低い温度での性能を強化するという意味で、実施上の利点となる。

得られた利点は二つの効果から生ずると解される。全体の性能は電池の陽極の有効面積の増大により改善されると解される。反応部位を提供するためのジルコニア／ニッケル／ガスの三重点への依存は除外される。混合導電性表面上のいずれかの地点は電気化学的な反応が起こるための必要な条件を提供する。減少した活性化エネルギーは本発明にかかる電池において律速過程が従来技術と異なることを示す。これは表面現象と関連する。利点に対して示された仮説は限定が意図されるのではなく、単に、いかにして明確な利点を生じえるのかに関する提案である。

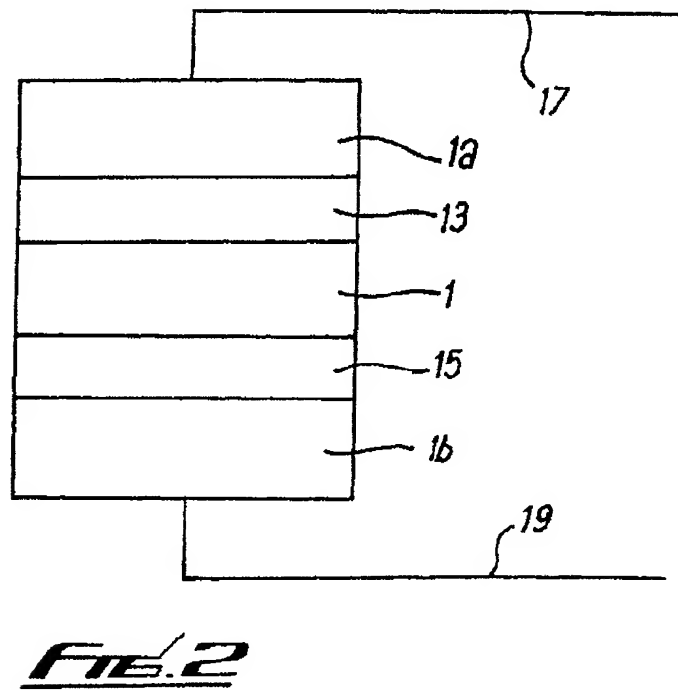
伝統的な $\text{Ni}/\text{ジルコニア}$ サーメットの再焼結及び有害な効果は、電極がウランニアであるために回避されうる。

本発明により製造されたタイルはスタック又はこの分野で良く知られた他のシステム配列中に配置されうる。

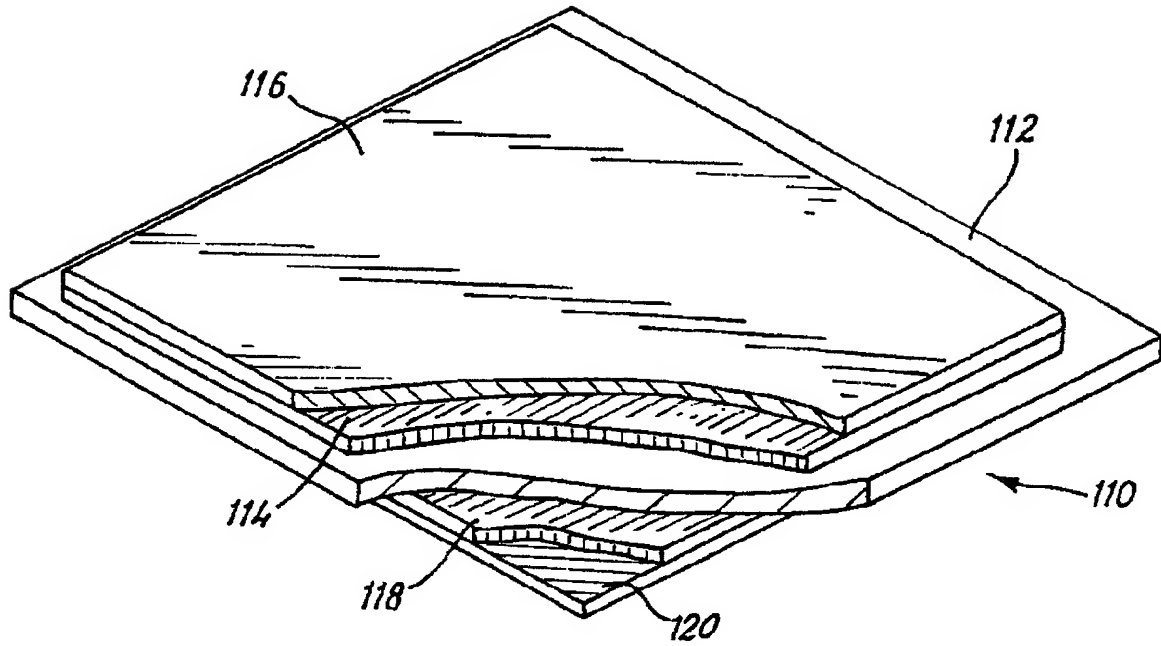
【図 1】



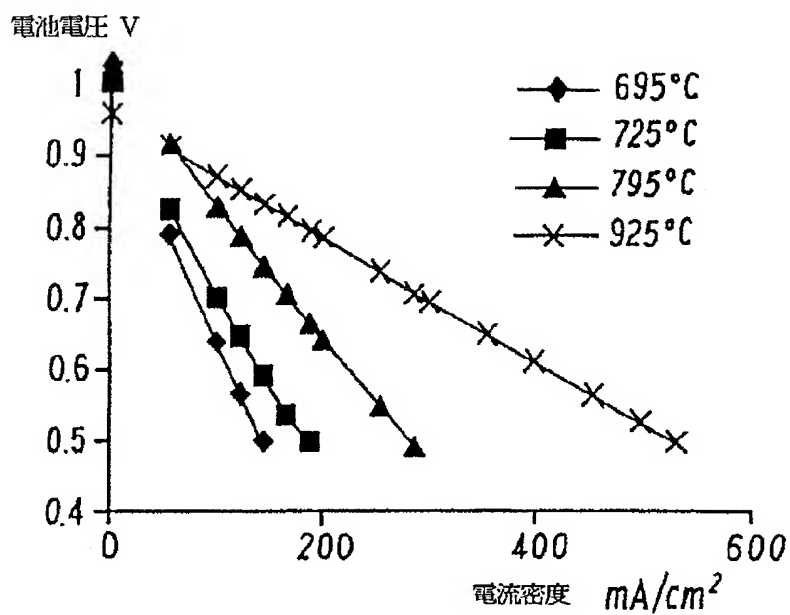
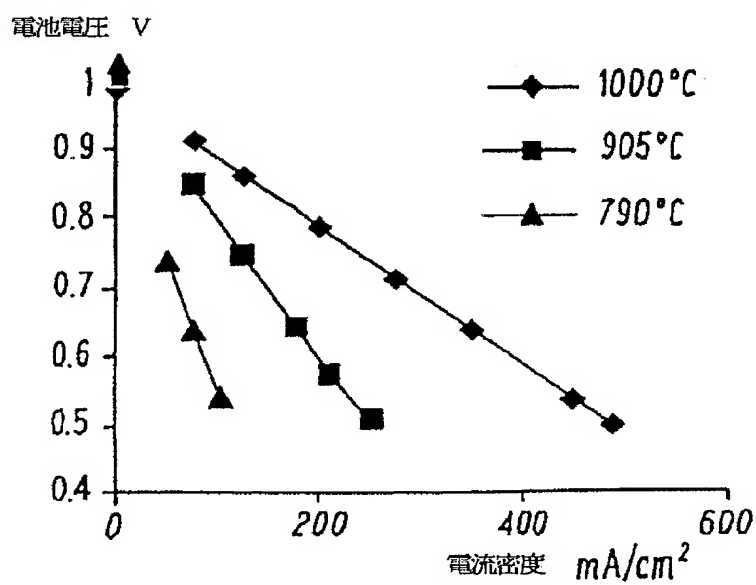
【図 2】



【図 3】

**FIG. 3**

【図 4】

Fe-4AFe-4B

【手続補正書】特許法第 184 条の 8 第 1 項

【提出日】 1997 年 4 月 17 日

【補正内容】

特許請求の範囲

1. 電解質物質の層と、該電解質物質の層の一方の面への第一の電極物質の層と、該電解質物質の層の他方の面への第二の電極物質の層と、少なくとも一の電極物質を該電解質層から分離する混合導体からなるセパレータ層とからなる固体酸化物燃料電池であって、該混合導体はイットリアとの二成分固溶体であるウラニアからなることを特徴とする固体酸化物燃料電池。
2. 一若しくはそれ以上のセパレータ層はさらに分離したジルコニアからなる請求項 1 記載の燃料電池。
3. セパレータ層は両方の電極物質を該電解質物質から分離する請求項 1 又は 2 記載の燃料電池。
4. 該二つの電極層の物質は同じものである請求項 2 記載の燃料電池。
5. 一又は複数の該セパレータ層はそれらがある該燃料電池の面の上で主要な電極機能を備え、その上に設けられた該電極物質層は主要な電流収集機能を備える請求項 1 乃至 3 の何れか記載の燃料電池。
6. イットリアは 40mol% から 60mol% のウラニアとの固溶体を形成する請求項 1 乃至 5 の何れか記載の燃料電池。
7. 電流コレクタ／電極物質はペロブスカイト及び／又は混合酸化ニッケル／ジルコニア系及び／又はランタン ストロンチウム マンガナイトを含む請求項 1 乃至 6 の何れか記載の燃料電池。
8. 電流コレクタ／電極物質は、ランタン ストロンチウム コバルタイトを含み又はそれからなり、該セパレータ層はこの電流コレクタ／電極物質をそれが反応する該電解質層から分離する請求項 1 乃至 7 の何れか記載の燃料電池。
9. 該セパレータ層／電極層又は下にある複数のセパレータ層／電極層のそれぞれの厚さは 100 μm (ミクロン) より小さい請求項 1 乃至 8 の何れか記載の燃料電池。

10. 電解質タイルを生成し、セパレータ層／電極層を該タイルに、そして電流コレクタ／電極物質層をイットリウムとの二成分固溶体であるウラニアからなる該セパレータ層／電極層に適用することよりなる固体酸化物燃料電池の製造方法。

11. 該電極層はウラニアとイットリアとバインド剤との懸濁液から形成される請求項 10 記載の方法。

12. 固溶体であるウラニア及びイットリアは懸濁液を形成するために微粒子ジルコニアと混合される請求項 11 記載の方法。

13. 電流収集層は一方若しくは両方の電極層に具備される請求項 10 乃至請求項 12 の何れか記載の方法。

14. 電極層及び／又は電流収集層は電解質タイル上にスクリーン印刷される請求項 13 記載の方法。

15. 隣接するセルの電極物質は導電性物質により接続される、前記の請求項 1 から 9 のいずれかに記載の、又は請求項 10 から 14 の何れか一の方法により製造された燃料電池のスタック。

16. 請求項 1 から 9 のいずれかに記載の燃料電池を組み込み、及び／又は請求項 10 から 14 の何れか一の方法に従い製造された燃料電池を組み込み、及び／又は請求項 15 記載の燃料電池のスタックにより作成される電流を生成する方法。

17. 水性懸濁液から電解質タイルを生成することよりなる固体酸化物燃料電池用電解質タイルの形成方法。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.
PCT/GB 96/00639

| A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 6 H01M8/12 | | |
|--|--|--|
| According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC | | |
| B. FIELDS SEARCHED | | |
| Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbol(s)) IPC 6 H01M | | |
| Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched | | |
| Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) | | |
| C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT | | |
| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
| X | WO,A,93 02481 (MERCK PATENT GMBH) 4 February 1993 see page 5, paragraph 2; claims 1,2,4,6 see page 6, paragraph 3 - page 7, paragraph 1 see page 8, line 27 - line 31 | 1-3,7,9, 16 |
| Y | --- | 5,6,15 |
| Y | WO,A,93 26055 (BRITISH NUCLEAR FUELS PLC ; LEWIN ROBERT GLYN (GB); WOOD GEOFFREY O) 23 December 1993 see claims 1-5,9,11; figure 1 | 5,6,15 |
| X | US,A,4 052 532 (TANNENBERGER HELMUT ET AL) 4 October 1977 | 1,2,4,5, 7,9-13, 16 |
| Y | see claims 1,2; examples 2,3 | 14 |
| | --- | |
| | - / - - | |
| <input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex. | | |
| * Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "Z" document member of the same patent family | | |
| Date of the actual completion of the international search 3 July 1996 | | Date of mailing of the international search report 22. 07. 96 |
| Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax (+31-70) 340-3016 | | Authorized officer D'hondt, J |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/GB 96/00639

| C (Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT | | |
|--|---|-----------------------|
| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
| X | US,A,4 142 024 (VAN DEN BERGHE PAUL ET AL) 27 February 1979 see column 4, line 1 - line 8; claims 1,2 see column 4, line 28 - line 53; figure 1 --- | 1,2,4,5, 9-13,16 |
| X | PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 017, no. 375 (E-1397), 14 July 1993 & JP,A,05 062688 (MURATA MFG CO LTD), 12 March 1993, see abstract --- | 1,2,7,8, 16 |
| Y | --- | 14 |
| X | DE,A,39 22 673 (SIEMENS AG) 24 January 1991 see column 6, line 57 - column 7, line 21; claim 1 --- | 1,2,7,8, 11,15,16 |
| Y | --- | 14 |
| X | JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY, vol. 139, no. 10, 1 October 1992, pages L89-L91, XP000358985 WANG L S ET AL: "LOWERING THE AIR-ELECTRODE INTERFACIAL RESISTANCE IN MEDIUM-TEMPERATURE SOLID OXIDE FUEL CELLS" see abstract --- | 1,2,7,8, 16 |
| X | PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 016, no. 582 (E-1300), 22 December 1992 & JP,A,04 230955 (TONEN CORP;OTHERS: 01), 19 August 1992, see abstract --- | 1,2,15 |
| A | EP,A,0 253 459 (WESTINGHOUSE ELECTRIC CORP) 20 January 1988 see claims 1,11-13 ----- | 6 |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No
PCT/GB 96/00639

| Patent document cited in search report | Publication date | Patent family member(s) | Publication date |
|---|---------------------|----------------------------|---------------------|
| WO-A-9302481 | 04-02-93 | DE-A- 4123694 | 21-01-93 |
| WO-A-9326055 | 23-12-93 | AU-B- 662990 | 21-09-95 |
| | | AU-B- 4342193 | 04-01-94 |
| | | CA-A- 2115068 | 23-12-93 |
| | | EP-A- 0606424 | 20-07-94 |
| | | JP-T- 6510630 | 24-11-94 |
| | | NO-A- 940380 | 05-04-94 |
| | | US-A- 5508127 | 16-04-96 |
| US-A-4052532 | 04-10-77 | CH-A- 594292 | 13-01-78 |
| | | BE-A- 835636 | 17-05-76 |
| | | DE-A- 2551936 | 20-05-76 |
| | | FR-A, B 2292342 | 18-06-76 |
| | | GB-A- 1500558 | 08-02-78 |
| | | JP-A- 51074243 | 28-06-76 |
| | | NL-A- 7513515 | 21-05-76 |
| US-A-4142024 | 27-02-79 | CH-A- 608310 | 29-12-78 |
| | | DE-A- 2723872 | 08-12-77 |
| | | FR-A, B 2353143 | 23-12-77 |
| | | GB-A- 1522787 | 31-08-78 |
| | | JP-A- 53010836 | 31-01-78 |
| | | NL-A- 7705643 | 30-11-77 |
| DE-A-3922673 | 24-01-91 | NONE | |
| EP-A-0253459 | 20-01-88 | US-A- 4702971 | 27-10-87 |
| | | CA-A- 1291788 | 05-11-91 |
| | | DE-A- 3785794 | 17-06-93 |
| | | JP-A- 62281271 | 07-12-87 |
| | | US-A- 4812329 | 14-03-89 |

フロントページの続き

(81) 指定国 EP(AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), AU, CA, CN, JP, KR, NO, NZ, US

(72) 発明者 バーネット, スティーヴン ヴァーノン
イギリス国, プレストン ピーアール4
Oエックスジェイ, サルウィック, スプリ
ングフィールド・ワークス, プリティッシ
ュ ニュークリア フューエルズ ピーエル
シー内 (番地なし)

(72) 発明者 ウッド, ジェフリー アラン
イギリス国, プレストン ピーアール4
Oエックスジェイ, サルウィック, スプリ
ングフィールド・ワークス, プリティッシ
ュ ニュークリア フューエルズ ピーエル
シー内 (番地なし)